

Rec'd PCT/PTO 29 JUN 2005

PCT/JP 03/16238

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

18.12.03

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

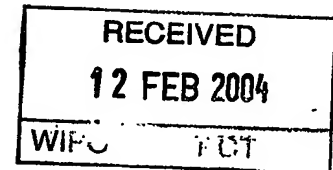
This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日  
Date of Application: 2003年 1月10日

出 願 番 号  
Application Number: 特願2003-004068  
[ST. 10/C]: [JP2003-004068]

出 願 人  
Applicant(s): 有限会社 アイ・オーアイ

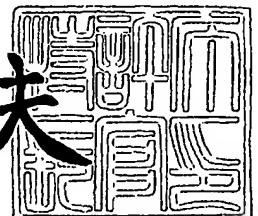
PRIORITY DOCUMENT  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH  
RULE 17.1(a) OR (b)



2004年 1月30日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今井康夫



BEST AVAILABLE COPY

出証番号 出証特2004-3004413

【書類名】 特許願

【整理番号】 P15-001

【提出日】 平成15年 1月10日

【あて先】 特許庁長官 殿

【発明の名称】 ポリアミド樹脂の接合助剤、並びにこれを用いた接合法、及びその加工製品

【請求項の数】 15

【発明者】

    【住所又は居所】 愛知県名古屋市千種区田代町字岩谷 3 8 - 4 1

    【氏名】 吉野 明広

【発明者】

    【住所又は居所】 愛知県名古屋市中区丸の内 1 丁目 4 番地 2 9 号 有限会社アイ・オーアイ内

    【氏名】 近藤 駆米雄

【特許出願人】

    【識別番号】 502211065

    【氏名又は名称】 有限会社 アイ・オーアイ

【代理人】

    【識別番号】 100083655

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 内藤 哲寛

    【電話番号】 052-322-6500

【手数料の表示】

    【予納台帳番号】 007179

    【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

    【物件名】 明細書 1

    【物件名】 図面 1

    【物件名】 要約書 1

【物件名】 委任状 1  
【援用の表示】 平成 1 5 年 1 月 1 0 日提出の包括委任状  
【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 ポリアミド樹脂の接合助剤、並びにこれを用いた接合法、及びその加工製品

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 ポリアミド樹脂成形品の接合予定面に別のポリアミド樹脂を接合する際、両者の接合強度を確保するために、前記接合予定面に塗布するポリアミド樹脂の接合助剤であって、

ポリアミド樹脂を溶解可能な有機溶剤に、その溶解を助けながらポリアミド樹脂成形品の水素結合を切断する化合物 (1) が含まれることを特徴とするポリアミド樹脂の接合助剤。

【請求項 2】 前記接合助剤には、ポリアミド樹脂が溶解して含まれていることを特徴とする請求項 1 に記載のポリアミド樹脂の接合助剤。

【請求項 3】 前記接合助剤には、前記ポリアミド樹脂成形品の水素結合を切断する化合物 (1) の水素結合を切断する作用を維持する化合物 (2) が含まれていることを特徴とする請求項 1 に記載のポリアミド樹脂の接合助剤。

【請求項 4】 前記接合助剤の有機溶剤は、分子量が 120 以下である有機溶剤であることを特徴とする請求項 1 に記載のポリアミド樹脂の接合助剤。

【請求項 5】 前記有機溶剤は複数種類よりなる有機溶剤の混合溶剤であることを特徴とする請求項 1 に記載のポリアミド樹脂の接合助剤。

【請求項 6】 前記ポリアミド樹脂成形品の水素結合を切断する化合物 (1) は、1, 3 ジヒドロキシベンゼン (CAS 番号; RN [108-46-3]) 又は/及び 3, 5 ジヒドロキシベンゼンカルボン酸 (CAS 番号; RN [99-10-5]) であることを特徴とする請求項 1 に記載のポリアミド樹脂の接合助剤。

【請求項 7】 前記ポリアミド樹脂成形品は、ナイロン 6 又はナイロン 66 であって、前記接合助剤に含まれるポリアミド樹脂は、前記ポリアミド樹脂成形品と同一であることを特徴とする請求項 2 に記載のポリアミド樹脂の接合助剤。

【請求項 8】 前記接合助剤には、ポリアミド樹脂成形品の水素結合を切断する化合物 (1) として、1, 3 ジヒドロキシベンゼン (CAS 番号; RN [1

08-46-3])が含まれていて、1, 3ジヒドロキシベンゼン(CAS番号; RN[108-46-3])の水素結合を切断する作用を維持する化合物(2)は、3, 5ジヒドロキシベンゼンカルボン酸(CAS番号; RN[99-10-5])かつ、又は/及びサリチル酸(CAS番号; RN[69-72-7])であることを特徴とする請求項3に記載のポリアミド樹脂の接合助剤。

【請求項9】 前記有機溶剤は、重量%で 50以上かつ90以下 であることを特徴とする請求項4に記載のポリアミド樹脂の接合助剤。

【請求項10】 前記化合物(1)は、重量%で 10以上かつ50以下 であることを特徴とする請求項6に記載のポリアミド樹脂の接合助剤。

【請求項11】 前記ポリアミド樹脂は、重量%で 0.005以上かつ1.000以下 であることを特徴とする請求項7に記載のポリアミド樹脂の接合助剤。

【請求項12】 前記有機溶剤は2種類よりなり、相互の比率が、重量比で 0.01以上かつ100以下 であることを特徴とする請求項5に記載のポリアミド樹脂の接合助剤。

【請求項13】 1, 3ジヒドロキシベンゼン(CAS番号; RN[108-46-3])と 3, 5ジヒドロキシベンゼンカルボン酸(CAS番号; RN[99-10-5])との相互の比率は、重量比で 0.001以上かつ100以下 であることを特徴とする請求項8に記載のポリアミド樹脂の接合助剤。

【請求項14】 前記請求項1に記載のポリアミド樹脂の接合助剤を用いた接合法。

【請求項15】 前記請求項14に記載のポリアミド樹脂の接合法を用いた加工製品。

#### 【発明の詳細な説明】

【0001】

#### 【発明の属する技術分野】

本発明は、ナイロン(商品名)に代表されるポリアミド樹脂成形品の接合強度を高めるために、接合予定面に塗布するその接合助剤、並びにこれを用いた接合法、及びその加工製品に関するものである。

## 【0002】

## 【従来の技術】

一般に、分子内に繰り返し単位としてアミド結合を有する線状高分子をポリアミドといい、そのなかでも脂肪族鎖を主とするポリアミドは、「ナイロン」の商品名で樹脂として広く流通しており、代表的なものにナイロン66やナイロン6等がある。ポリアミド樹脂は、異なる高分子鎖のアミド結合間で水素結合が形成されうる結晶性の高分子であって、その結晶構造は、前記アミド結合同士が同一平面内で規則的に水素結合すると同時に、各平面が層状に配置して構成される堅牢なものである。このアミド結合による極性及び前記結晶構造によって、ポリアミド樹脂は、ガソリン、オイルなどの炭化水素系溶剤に対して優れた耐性があり、また、比較的耐熱性が高く、しかも材料強度を有しているので、自動車部品、機械部品等に好適な樹脂材料として広く用いられている。そして一度の型成形では成形不可能な(たとえばアンダーカット)形状を有する部品を形成するためには、対応する形状部分を個別にポリアミド樹脂で成形する必要が生じるが、強固な接合強度を得るためにその接合予定面を熱処理し、溶着に近い形でポリアミド樹脂同士を接合する方法が従来用いられていた。

## 【0003】

## 【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、上記した方法に準じて、例えばポリアミド樹脂であるナイロン6を使用して、金型にセットしたナイロン6の既成形品に対して、付加成形部分となる熔融状態のナイロン6を射出充填し、両者を接合しようとしても、両者は、接合するものの接合強度は不十分である。また接合せずに冷えると分離したりする。理由は以下のとおりである。前記既成形品の端面であって、接合予定面を形成するナイロン6高分子鎖のアミド結合は、前記同一平面内で相互に水素結合すべき隣接する相手の高分子鎖が存在しないので、水素結合していない遊離状態の部分がある。

## 【0004】

また、付加成形部分となるナイロン6の熔融樹脂を金型中に射出充填するためには、この金型を加熱して所定の温度に保ちながら下準備する必要があるが、前

記既成形品の接合予定面を形成するナイロン6の前記遊離状態のアミド結合は、この熱処理時に、水素結合の相手をなるべく探して会合しようとし、自身のナイロン6の高分子鎖に向けて手当たり次第に無定形に水素結合してしまう。

#### 【0005】

このようにして、本来付加成形部分の熔融状態にあるナイロン6のアミド結合と水素結合するはずの既成形品の接合予定面にあるアミド結合は、無定形ではあるものの、自身のナイロン6高分子鎖間において、既に水素結合を形成した状態で金型にセットされている。よって、金型中に射出される付加成形部分の熔融状態にあるナイロン6のアミド結合は、射出後に金型内で冷却されると共に、自身の高分子鎖において相互に水素結合し、結果的に、既成形品のナイロン6と熔融樹脂のナイロン6とが各々個別に結晶化するので、両者は接合しにくい。

#### 【0006】

同様の問題は、ポリアミド樹脂成形品同士を超音波溶着する場合にも当てはまる。即ち、超音波による振動エネルギーを両接合予定面に集中させ、この部分のポリアミド樹脂同士を加熱して僅かに熔融させながら相互に水素結合させた後に、冷却して接合するはずが、上記したように熱処理される過程で、各ポリアミド樹脂成形品が、個別に結晶化してしまう。よって、より効率よくエネルギーを集中させて十分に溶着させるために、前記接合予定面に、当接面積を確保する多数のエッジを精密に加工する等の処理が行われているが、両ポリアミド樹脂成形品は、接合するものの強度的には不十分である。

#### 【0007】

なお、ポリアミド樹脂成形品を用いて、適度な接合強度をもたらす接合方法としては、抵抗溶着方法がある。被成形品の外形状に沿って、導電線を組込み、通電して導電線を発熱させ熱線とし、被成形品を熔融させながら、その上からポリアミド熔融樹脂を金型中に射出充填して成形する方法である。しかし、導電線を組み込む作業効率が非常に悪く、コスト高となる。

#### 【0008】

本発明は、ポリアミド樹脂同士を、十分な接合強度を有して接合することを課題としている。

## 【0009】

## 【課題を解決するための手段】

上記目的を達成するため、請求項1に記載の本発明は、ポリアミド樹脂成形品の接合予定面に別のポリアミド樹脂を接合する際に、両者の接合強度を確保するために、前記接合予定面に塗布するポリアミド樹脂の接合助剤であって、ポリアミド樹脂を溶解可能な有機溶剤に、その溶解を助けながらポリアミド樹脂成形品の水素結合を切断する化合物(1)が含まれることを要旨とする。

## 【0010】

ここで有機溶剤としては炭素数1～6のアルコール類、炭素数1～6のケトンまたはアルデヒド類、炭素数1～6のニトリル類が挙げられ、具体的にはメタノール、イソプロピルアルコール、アセトン、アセトニトリル等が有効である。これらの有機溶剤は、極僅かにポリアミド樹脂を溶解可能なポリアミド樹脂の貧溶媒である。化合物(1)としては、一価ないし三価のフェノール類等が上げられるが、他の価数を有するものでもよい。

## 【0011】

請求項2に記載の本発明は、請求項1に記載の発明において、前記接合助剤には、ポリアミド樹脂が溶解して含まれていることを要旨とする。ここでポリアミド樹脂は、前記ポリアミド樹脂成形品と同等のものが望ましい。

## 【0012】

請求項3に記載の本発明は、請求項1に記載の発明において、前記接合助剤には、前記ポリアミド樹脂成形品の水素結合を切断する化合物(1)の水素結合を切断する作用を維持する化合物(2)が含まれていることを要旨とする。ここで化合物(2)としては、有機酸等が上げられる。具体的には、蟻酸、カルボン酸等であり、より具体的には、フェノールの一価ないし三価カルボン酸誘導体等が上げられるが他の価数を有するカルボン酸でも良い。

## 【0013】

請求項4に記載の本発明は、請求項1に記載の発明において、前記接合助剤の有機溶剤は、分子量が120以下である有機溶剤であることを要旨とする。

## 【0014】



請求項 5 に記載の本発明は、請求項 1 に記載の発明において、前記有機溶剤は複数種類よりなる有機溶剤の混合溶剤であることを要旨とする。

【0015】

請求項 6 に記載の本発明は、請求項 1 に記載の発明において、前記ポリアミド樹脂成形品の水素結合を切断する化合物 (1) は、1, 3 ジヒドロキシベンゼン (CAS 番号; RN [108-46-3]) 又は/及び 3, 5 ジヒドロキシベンゼンカルボン酸 (CAS 番号; RN [99-10-5]) であることを要旨とする。

【0016】

請求項 7 に記載の本発明は、請求項 2 に記載の発明において、前記ポリアミド樹脂成形品は、ナイロン 6 又はナイロン 66 であって、前記接合助剤に含まれるポリアミド樹脂は、前記ポリアミド樹脂成形品と同一であることを要旨とする。

【0017】

請求項 8 に記載の本発明は、請求項 3 に記載の発明において、前記接合助剤には、ポリアミド樹脂成形品の水素結合を切断する化合物 (1) として、1, 3 ジヒドロキシベンゼンが含まれていて、1, 3 ジヒドロキシベンゼン (CAS 番号; RN [108-46-3]) の水素結合を切断する作用を維持する化合物 (2) は、3, 5 ジヒドロキシベンゼンカルボン酸 (CAS 番号; RN [99-10-5])、かつ、及び/又はサリチル酸 (CAS 番号; RN [69-72-7]) であることを要旨とする。

【0018】

請求項 9 に記載の本発明は、請求項 4 に記載の発明において、前記有機溶剤は、重量%で 50 以上かつ 90 以下 であることを要旨とする。

【0019】

請求項 10 に記載の本発明は、請求項 6 に記載の発明において、前記化合物 (1) は、重量%で 10 以上かつ 50 以下 であることを要旨とする。

【0020】

請求項 11 に記載の本発明は、請求項 7 に記載の発明において、前記ポリアミド樹脂は、重量%で 0.005 以上かつ 1.000 以下 であることを要旨とする。

している。

#### 【0021】

請求項12に記載の本発明は、請求項5に記載の発明において、前記有機溶剤は2種類よりなり、相互の比率が、重量比で 0.01以上かつ100以下 であることを要旨としている。

#### 【0022】

請求項13に記載の本発明は、請求項8に記載の発明において、1,3ジヒドロキシベンゼン（CAS番号；RN〔108-46-3〕）と3,5ジヒドロキシベンゼンカルボン酸（CAS番号；RN〔99-10-5〕）との相互の比率は、重量比で 0.001以上かつ1000以下 であることを要旨としている。

#### 【0023】

請求項14に記載の本発明は、請求項1に記載の発明において、ポリアミド樹脂の接合助剤を用いた接合方法であることを要旨とする。ここで接合方法としては、被成形品の接合予定面に対して本件の接合助剤を塗布し、金型へセットし、射出充填を行う射出成形接合方法や、ポリアミド樹脂成形品に超音波振動を与えることで接合する超音波溶着方法等を指す。

#### 【0024】

請求項15に記載の本発明は、請求項14に記載の発明において、ポリアミド樹脂の接合工法を用いた加工製品であることを要旨とする。

#### 【0025】

##### 【発明の効果】

請求項1の発明によれば、以下の効果が得られる。ポリアミド樹脂の成形品の接合予定面と別のポリアミド樹脂を接合する際に、本請求項1の接合助剤を前記接合予定面に塗布することによって、ポリアミド樹脂成形品の水素結合を切断する化合物(1)（以下の説明において、単に「化合物(1)」とも記す）が、該接合予定面の隣接するポリアミド高分子鎖のアミド結合間の水素結合を切断しながら、その水素結合を切断されたアミド結合や、水素結合していない遊離状態のアミド結合と水素結合するために、接合予定面のアミド結合同士が再び水素結合して

しまうことを防止できる。また、有機溶剤は、接合予定面に接合助剤を薄く塗るために必要である。

#### 【0026】

ここで、上記した前記化合物(1)の接合予定面への作用は、赤外線吸収スペクトル等で分析することによって確認でき、熱処理工程までその作用が維持されることが解かっている。例えば、ポリアミド樹脂の成形品の接合予定面を熱処理しながら別のポリアミド樹脂と接合する方法としては、金型にセットしたポリアミド樹脂の既成形品に対して、付加形成部分の熔融状態のポリアミド樹脂を射出充填し、両者を接合する方法がある。このような場合、接合助剤を塗布された前記既成形品の接合予定面は、金型内で加熱されてもなおアミド結合間の水素結合が切断された活性状態を維持することができる。よって、既成形品のポリアミド樹脂は、接合助剤の塗布前と比較すると、その接合予定面においてより非晶化された状態となって、金型中に射出される付加成形部の熔融状態にあるポリアミド樹脂のアミド結合と共に無定形状態になり易く、加熱後に金型中で冷却される過程で、両者間で水素結合しながら再結晶化を促されるので、ポリアミド樹脂同士を一体物の材料強度と遜色ない接合強度で接合することが可能となる。

#### 【0027】

請求項2の発明によれば、請求項1の作用効果に加えて、以下の効果が得られる。前記接合助剤は、接合予定面のポリアミド樹脂を僅かに溶解しながら、接合予定面のポリアミド樹脂の結晶を解きほぐし、ポリアミド樹脂のアミド結合間の水素結合を切断し、さらに溶解された成形品のポリアミド樹脂が元々含まれるポリアミド樹脂の溶解を促して接合予定面の元々の凹凸を軽減するのでポリアミド樹脂自身で接合予定面を物理的に平滑に変形できる。よって、接合予定面と接合されるポリアミド樹脂とが、「面」に近い状態で接触できる面積が大きくなり、接合強度の信頼性を高めることができる。

#### 【0028】

請求項3の発明によれば、請求項1の作用効果に加えて、以下の効果が得られる。ポリアミド樹脂成形品の水素結合を切断する化合物(1)がフェノール類の場合、そのアニオンがベンゼン環と共鳴して安定化することにより、解離した後

に酸化・分解しやすく、その本来の作用が失効する恐れがある。従って、化合物 (1) の水素結合を切断する作用を維持するために、化合物 (1) より小さな  $pK_a$  を示す化合物 (2) を添加し、その化合物 (2) 自身を解離させることにより、フェノール類の酸化・分解を防止でき、ポリアミド樹脂成形品の水素結合を切断する化合物の作用を失効させない。よって、化合物 (1) の作用を持続でき、接合強度の信頼性が高まる。なお、以下の説明において、前記化合物 (1) の水素結合を切断する作用を維持する化合物 (2) を、単に「化合物 (2)」と記す。

#### 【0029】

請求項 4 の発明によれば、請求項 1 の作用効果に加えて、以下の効果が得られる。分子量が 120 以下の有機溶剤は、比較的分子が小さく、容易にポリアミド樹脂に接近可能であって、その分子間力に打ち勝って中に進入し易く、かつ蒸発し易い。よって、接合助剤中の化合物 (1) や溶解しているポリアミド樹脂が、接合予定面のポリアミド樹脂と水素結合しやすくなって、接合強度の信頼性を高めることができる。

#### 【0030】

請求項 5 の発明によれば、請求項 1 の作用効果に加えて、以下の効果が得られる。有機溶剤を複数種類混合することによって、それらの混合有機溶剤は、(1 種類の有機溶剤だけの場合と比較すると) 接合助剤の塗布作業に支障の無い蒸気圧に調整することができる。塗布後 1 分前後 (室温 20 度前後を想定して) は溶液状態を保つので、塗布直後の成形品のポリアミド樹脂の溶解を促し、化合物 (1) や溶解しているポリアミド樹脂と接合予定面のポリアミド樹脂との水素結合がより速やかに進行する。

#### 【0031】

請求項 6 の発明によれば、請求項 1 の作用効果に加えて、以下の効果が得られる。1, 3 ジヒドロキシベンゼン (CAS 番号; RN [108-46-3]) 及び 3, 5 ジヒドロキシベンゼンカルボン酸は、比較的大きな極性を示す水酸基又はカルボキシル基を有しており、良好にポリアミドのアミド結合と水素結合できる。また、1, 3 ジヒドロキシベンゼン (CAS 番号; RN [108-46-

3)) は昇華性を有している。1, 3 ジヒドロキシベンゼン (CAS 番号; RN [108-46-3]) は、接合助剤を接合予定面に塗布した後に少しずつ昇華し、ポリアミド樹脂であるたとえばナイロン類の熱変形温度や成形温度は、さらに高温であるので、ポリアミド樹脂を熱処理する過程ではほぼ完全に蒸発する。

#### 【0032】

一方、3, 5 ジヒドロキシベンゼンカルボン酸 (CAS 番号; RN [99-10-5]) は、1, 3 ジヒドロキシベンゼン (CAS 番号; RN [108-46-3]) と同様にベンゼン環及び水酸基を有しており、これら官能基に起因する同様の作用効果を有しているが、それぞれの水酸基のメタ位にカルボキシル基が結合したフェノールのカルボン酸誘導体であって、この特性により、 $pK_a$  値は1, 3 ジヒドロキシベンゼンの9.3よりも3, 5 ジヒドロキシベンゼンカルボン酸の3.0の方が小さく昇華性も無い。よって、3, 5 ジヒドロキシベンゼンカルボン酸は、ポリアミド樹脂と共に結晶化した後の接合面に残存するが、ポリアミド樹脂材料としての粘り強さを呈するのに都合よく非晶質ないし無定形の格子欠陥の領域を埋める。また、1, 3 ジヒドロキシベンゼン (CAS 番号; RN [108-46-3]) と3, 5 ジヒドロキシベンゼンカルボン酸 (CAS 番号; RN [99-10-5]) とを、適宜混合して使用すると、良好にポリアミドのアミド結合と水素結合する。

#### 【0033】

請求項7の発明によれば、請求項2の作用効果に加えて、以下の効果が得られる。剛直でかつ対称な環状構造を有する脂肪族環や芳香族環と異なり、ナイロン6やナイロン66のアミド結合側鎖のメチレン基の配置には、ある程度自由度があるので、結晶化から非晶化或いはその逆に相転移する自由度も大きく、接合助剤中のポリアミド樹脂成形品の水素結合を切断する化合物が作用し易く、十分な強度を得ることができる。また、前記接合助剤に含まれるポリアミド樹脂も成形品と同一のナイロン6又はナイロン66なので、接合予定面への挿入が容易となり、接合強度の信頼性を高めることができる。

#### 【0034】

請求項8の発明によれば、請求項3の作用効果に加えて、以下の効果が得られ

る。3, 5ジヒドロキシベンゼンカルボン酸は、有機溶剤中で自身が解離することによって1, 3ジヒドロキシベンゼン(CAS番号; RN[108-46-3])のフェノール性水酸基の解離を抑えたとともに一部は1, 3ジヒドロキシベンゼン(CAS番号; RN[108-46-3])と相互に水素結合を形成し、有機溶剤が蒸発した後にもそれとの会合状態を維持するので、1, 3ジヒドロキシベンゼン(CAS番号; RN[108-46-3])の酸化及び昇華を同時に防げる。よって、化合物(1)である1, 3ジヒドロキシベンゼン(CAS番号; RN[108-46-3])の作用が失効しない。しかも3, 5ジヒドロキシベンゼンカルボン酸(CAS番号; RN[99-10-5])も、その水酸基部分及びカルボキシル基部分において化合物(1)として作用することができ、接合予定面の非晶化を高めることができ、さらにその状態を維持することができる。

#### 【0035】

また、接合助剤中のポリアミド樹脂も、1, 3ジヒドロキシベンゼン(CAS番号; RN[108-46-3])と水素結合できるので、その昇華を防ぐ作用を有している。このようにして、接合助剤中の化合物(1)の酸化・分解を防止して、接合助剤の品質を維持できる。接合助剤中の有機溶剤は、塗布後間もなく蒸発するが、1, 3ジヒドロキシベンゼンがしばらく蒸発せず残存し、さらに3, 5ジヒドロキシベンゼンカルボン酸(CAS番号; RN[99-10-5])が蒸発しないため、接合予定面のポリアミド樹脂表面の非晶状態を長時間維持できる。よって、接合する別のポリアミド樹脂と、接合される元の成形品のポリアミド樹脂とを、接合助剤の塗布直後に必ずしも接合処理しなくても、両者の接合強度が損なわれないので、多様な接合作業工程に対応できる。

#### 【0036】

請求項9の発明によれば、請求項4の作用効果に加えて、以下の効果が得られる。前記有機溶剤が重量%で50未満であると化合物(1)もしくは化合物(2)の溶解が困難であり、90より大きくなるとポリアミド樹脂表面を変質させるだけの十分な化合物(1)又は化合物(2)を含むことが困難である。

#### 【0037】

請求項10の発明によれば、請求項6の作用効果に加えて、以下の効果が得られる。前記化合物(1)が重量%で10未満であるとポリアミド樹脂表面を接合させるだけの改質が困難であり、50より大きくなると前記有機溶剤へ溶解させられない。

#### 【0038】

請求項11の発明によれば、請求項7の作用効果に加えて、以下の効果が得られる。前記ポリアミド樹脂が重量%で0.005未満であると接合する際の効果として現れにくく、1.000より小さくなると接合時の強度の安定性に優れる場合がある。実際の成果としては以下実施例で述べるものとする。

#### 【0039】

請求項12の発明によれば、請求項5の作用効果に加えて、以下の効果が得られる。前記2種類の有機溶剤の比率が、0.01未満または100より大きいと混合した効果が現れにくい、0.01以上または100以下であると接合助剤の塗布作業に支障の無い蒸気圧に調整することができる。

#### 【0040】

請求項13の発明によれば、請求項8の作用効果に加えて、以下の効果が得られる。1,3ジヒドロキシベンゼン(CAS番号;RN[108-46-3])と3,5ジヒドロキシベンゼンカルボン酸(CAS番号;RN[99-10-5])との相互の比率が、0.001未満または1000より大きいと混合した効果が現れにくい、0.001以上または1000以下であると、1,3ジヒドロキシベンゼンより小さな $pK_a$ を示す3,5ジヒドロキシベンゼンカルボン酸を添加し、それ自身を解離させることにより、1,3ジヒドロキシベンゼンの酸化・分解を防止できるので、ポリアミド樹脂成形品の水素結合を切断する化合物の作用を失効させない。よって、接合予定面のポリアミド樹脂の水素結合が切断された状態を持続でき、接合強度の信頼性が高まる。

#### 【0041】

請求項14の発明によれば、請求項1の作用効果に加えて、以下の効果が得られる。産業界で多用されている射出成形接合法、超音波溶着工法等のポリアミド樹脂成形品の各種接合法に対して本発明の接合法を付加することにより、

一体成形品と遜色の無い接合強度を得ることができる。すなわち従来不可能であった2部材の射出成形による強固な接合が可能になり、また超音波溶着工法では、その溶着接合部位が少量ですむために、接合面が綺麗な状態で接合が可能となる。また当該技術分野におけるコストダウンや工程削減での貢献度は多大である。

#### 【0042】

請求項15の発明によれば、請求項1に記載の接合助剤を用いることで、射出成形をはじめとするブロー成形、押出し成形など、種々の成形方法や、超音波溶着、振動溶着等の他、レーザー溶着、電磁誘導ウェルダー等の接合面の加熱溶融により接合する方法によっても、強固に接合した複数の部材によるポリアミド樹脂加工製品を形作ることができる。これは、これまで一度の成形では形作ることができなかったアンダーカットの形状や中空成形品を接合することにより安価に容易に作成することができる。

#### 【0043】

##### 【発明の実施の形態】

以下、本発明の実施形態として、本発明に係る接合助剤と、図1に示す形状の試験片T<sub>1</sub>を、接合助剤を使用してポリアミド樹脂で接合しながら射出成形する方法について説明する。図1に示されるように、試験片T<sub>1</sub>は、均一な厚みで平面視においてダンベル型の形状を有しており、自身を長手方向に二分割した形状の片側の既成形品部T<sub>11</sub>を予め射出成形した後に、そのくびれ部分の端面である接合予定面3に本発明に係る接合助剤を塗布した後、図2及び図3に示す金型M内へセットし、試験片T<sub>1</sub>の残余の形状部分である付加成形部T<sub>12</sub>を、射出付加成形した試験片である。

#### 【0044】

金型Mは、上型5及び下型6よりなり、上型5及び下型6は、試験片T<sub>1</sub>の約半分の厚みを有する形状に対応する凹部5a、6aを有しており、両凹部5a、6aを上下方向に対向させた状態で接触面を密着させ、試験片T<sub>1</sub>の形状に対応するキャビティが形成される。既成形品部T<sub>11</sub>は、下型6の凹部6aにセットされた状態で上型5を型締めされ、前記キャビティの残余の空間部分に付加成形部



T<sub>12</sub>の形状に対応するキャビティ J が形成される。該キャビティ J には、ナイロン 6 の溶融樹脂が射出され、既成形品部 T<sub>11</sub>の接合予定面 3 に付加成形部 T<sub>12</sub>が接合される。なお、図 2 及び図 3 の 7 は、溶融樹脂をキャビティ J の内部に射出する射出ゲートである。

#### 【0045】

既成形品部 T<sub>11</sub>及び付加成形部 T<sub>12</sub>は、同形状であって、いずれも（長さ L<sub>1</sub> × 幅 W<sub>1</sub> × 厚さ K<sub>1</sub> = 75 × 10 × 3 mm）で、両者が接合された状態で全長 150 mm の試験片 T<sub>1</sub>を形成する。また、既成形品部 T<sub>11</sub>及び付加成形部 T<sub>12</sub>を成形するポリアミド樹脂の原材料として、ナイロン 6 樹脂には、ノバミッド 101, 3CH5（三菱エンジニアリングプラスチックス社製）を使用した。ナイロン 66 にはノバミッド 3010SR（三菱エンジニアリングプラスチックス社製）を使用した。

#### 【0046】

射出成形の成形条件は、以下のとおりである。成形機械には新潟鉄工 NN50Hy pershot3000 を使用し、成形温度はナイロン 6（ノバミッド 101, 3CH5）射出ノズル部から順に 231-230-225-225℃とした。ナイロン 66（ノバミッド 3010SR）については同成形機械にて 280-275-275-270℃と設定した。いずれも金型温度に関しては 85℃を設定値とした。

#### 【0047】

射出成形品の評価方法は以下のとおりである。試験片 T<sub>1</sub>はサンプル数 N=5 とし、室温 23℃、湿度 50% の恒温室内にて 48 時間放置した後に、実施例 31 及び比較例 3 を除くすべての実施例及び比較例においては、同恒温室内にてインストロン型万能試験機（INSTON 社製）を使用し、実施例 31 及び比較例 3 においては、前記インストロン型万能試験機に恒温槽（島津製作所製の TCE-N30）を付加して 100℃の雰囲気において、それぞれ引張試験を行った。試験速度は 50 mm/min とし、試験片 T<sub>1</sub>が破断に至るまでの最大引張り強さを測定した。

#### 【0048】

接合助剤の成分と、接合助剤を使用した試験片 T<sub>1</sub>の試験結果は【表 1】～【表 21】中に示す。

【0049】

【表1】

			実施例1	実施例2	実施例3
有機溶剤	A	(wt%)	70.000	58.000	80.000
化合物(1)	E	(wt%)	30.000	42.000	
	F	(wt%)			20.000
引張り強さ	MPa		65.2	51.5	64.4
標準偏差	MPa		7.4	9.5	4.9

【0050】

【表2】

			実施例4	実施例5	実施例6	実施例7
有機溶剤	C	(wt%)			80.000	80.000
	D	(wt%)	80.000	80.000		
化合物(1)	E	(wt%)	20.000		20.000	
	F	(wt%)		20.000		20.000
引張り強さ	MPa		53.9	70.2	47.7	56.8
標準偏差	MPa		7.8	0.3	16.3	13.7

【0051】

【表3】

			実施例8	実施例9	実施例10
有機溶剤	A	(wt%)	70.000	57.000	80.000
化合物(1)	E	(wt%)	29.700	42.700	
	F	(wt%)			19.950
ポリアミド樹脂	H	(wt%)	0.300	0.300	0.050
引張り強さ	MPa		57.3	62.9	70.9
標準偏差	MPa		5.1	1.9	1.2

【0052】

【表 4】

			実施例13
有機溶剤	A	(wt%)	60.000
化合物 (1)	E	(wt%)	34.920
化合物 (2)	F	(wt%)	4.920
化合物総和		(wt%)	39.840
ポリアミド樹脂	H	(wt%)	0.160
引張り強さ	MPa		61.5
標準偏差	MPa		6.9
E/F			7.098

【0053】

【表 5】

			実施例17
有機溶剤	A	(wt%)	69.000
	B	(wt%)	1.000
有機溶剤総和		(wt%)	70.000
化合物 (1)	E	(wt%)	29.700
ポリアミド樹脂	H	(wt%)	0.300
引張り強さ	MPa		57.6
標準偏差	MPa		3.5
有機溶剤の比率			69.000

【0054】

【表 6】

			実施例19	実施例20	実施例21
有機溶剤	A	(wt%)	70.000	40.000	
	B	(wt%)	10.000	40.000	40.000
	D	(wt%)			40.000
有機溶剤総和		(wt%)	80.000	80.000	80.000
化合物(1)	F	(wt%)	19.920	19.920	19.980
ポリアミド樹脂	H	(wt%)	0.080	0.080	0.020
引張り強さ	MPa		70.9	70.9	69.9
標準偏差	MPa		0.5	0.4	0.3
有機溶剤の比率			7.000	1.000	1.000

【0055】

【表 7】

			実施例22	実施例24	実施例25
有機溶剤	A	(wt%)		40.000	40.000
	B	(wt%)	40.000	40.000	40.000
	C	(wt%)	40.000		
有機溶剤総和		(wt%)	80.000	80.000	80.000
化合物(1)	E	(wt%)		2.000	1.000
	F	(wt%)	19.980		
化合物(2)	F	(wt%)		17.980	18.980
化合物総和		(wt%)	19.980	19.980	19.980
ポリアミド樹脂	H	(wt%)	0.020	0.020	0.020
引張り強さ	MPa		65.6	63.0	64.8
標準偏差	MPa		3.6	4.5	3.0
有機溶剤の比率			1.000	1.000	1.000
E/F				0.111	0.053

【0056】

【表 8】

			実施例26	実施例27	実施例28
有機溶剤	A	(wt%)	40.000		
	B	(wt%)	40.000	40.000	40.000
	C	(wt%)			40.000
	D	(wt%)		40.000	
有機溶剤総和		(wt%)	80.000	80.000	80.000
化合物（１）	E	(wt%)	9.990	9.990	9.990
化合物（２）	F	(wt%)	9.990	9.990	9.990
化合物総和		(wt%)	19.980	19.980	19.980
ポリアミド樹脂	H	(wt%)	0.020	0.020	0.020
引張り強さ		MPa	66.0	67.3	57.5
標準偏差		MPa	1.1	0.9	16.3
有機溶剤の比率			1.000	1.000	1.000
E／F			1.000	1.000	1.000

【0057】

【表 9】

			実施例29	実施例30	実施例31
有機溶剤	A	(wt%)	40.000	40.000	40.000
	B	(wt%)	40.000	40.000	40.000
有機溶剤総和		(wt%)	80.000	80.000	80.000
化合物（1）	E	(wt%)	9.992	9.920	9.992
化合物（2）	F	(wt%)	9.992	9.920	9.992
化合物総和		(wt%)	19.984	19.984	19.984
ポリアミド樹脂	H	(wt%)	0.016	0.160	0.016
引張り強さ	MPa		54.5	62.4	25.0
標準偏差	MPa		9.8	9.1	0.8
有機溶剤の比率			1.000	1.000	1.000
E／F			1.000	1.000	1.000

【0058】

【表 10】

			実施例33	実施例34
有機溶剤	A	(wt%)	40.000	40.000
	B	(wt%)	39.984	39.840
有機溶剤総和		(wt%)	79.984	79.840
化合物（1）	E	(wt%)	10.000	10.000
化合物（2）	F	(wt%)	10.000	10.000
化合物総和		(wt%)	20.000	20.000
ポリアミド樹脂	H	(wt%)	0.016	0.160
引張り強さ	MPa		56.5	60.4
標準偏差	MPa		14.7	6.9
有機溶剤の比率			1.000	1.000
E／F			1.000	1.000

【0059】

【表 11】

			実施例11	実施例12	実施例13
有機溶剤	A	(wt%)	57.000	80.000	60.000
化合物（1）	E	(wt%)	42.999	10.000	34.920
化合物（2）	F	(wt%)		10.000	4.920
	G	(wt%)	0.001		
化合物総和		(wt%)	43.000	20.000	39.840
ポリアミド樹脂	H	(wt%)			0.160
引張り強さ	MPa		51.4	65.0	61.5
標準偏差	MPa		7.6	1.3	6.9
E／F				1.000	7.098

【0060】

【表 1 2】

			実施例23	実施例24	実施例25
有機溶剤	A	(wt%)	40.000	40.000	40.000
	B	(wt%)	40.000	40.000	40.000
有機溶剤総和		(wt%)	80.000	80.000	80.000
化合物（1）	E	(wt%)	10.000	2.000	1.000
化合物（2）	F	(wt%)	10.000	17.980	18.980
化合物総和		(wt%)	20.000	19.980	19.980
ポリアミド樹脂	H	(wt%)		0.020	0.020
引張り強さ		MPa	62.1	63.0	64.8
標準偏差		MPa	6.9	4.5	3.0
有機溶剤の比率			1.000	1.000	1.000
E／F			1.000	0.111	0.053

【0061】

【表 1 3】

			実施例26	実施例27	実施例28
有機溶剤	A	(wt%)	40.000		
	B	(wt%)	40.000	40.000	40.000
	C	(wt%)			40.000
	D	(wt%)		40.000	
有機溶剤総和		(wt%)	80.000	80.000	80.000
化合物（１）	E	(wt%)	9.990	9.990	9.990
化合物（２）	F	(wt%)	9.990	9.990	9.990
化合物総和		(wt%)	19.980	19.980	19.980
ポリアミド樹脂		H	(wt%)	0.020	0.020
引張り強さ		MPa	66.0	67.3	57.5
標準偏差		MPa	1.1	0.9	16.3
有機溶剤の比率			1.000	1.000	1.000
E／F			1.000	1.000	1.000

【0062】

【表 14】

			実施例29	実施例30	実施例31
有機溶剤	A	(wt%)	40.000	40.000	40.000
	B	(wt%)	40.000	40.000	40.000
有機溶剤総和		(wt%)	80.000	80.000	80.000
化合物(1)	E	(wt%)	9.992	9.920	9.992
化合物(2)	F	(wt%)	9.992	9.920	9.992
化合物総和		(wt%)	19.984	19.984	19.984
ポリアミド樹脂	H	(wt%)	0.016	0.160	0.016
引張り強さ	MPa		54.5	62.4	25.0
標準偏差	MPa		9.8	9.1	0.8
有機溶剤の比率			1.000	1.000	1.000
E/F			1.000	1.000	1.000

【0063】

【表 15】

			実施例32	実施例33	実施例34
有機溶剤	A	(wt%)	40.000	40.000	40.000
	B	(wt%)	40.000	39.984	39.840
有機溶剤総和		(wt%)	80.000	79.984	79.840
化合物(1)	E	(wt%)	10.000	10.000	10.000
化合物(2)	F	(wt%)	10.000	10.000	10.000
化合物総和		(wt%)	20.000	20.000	20.000
ポリアミド樹脂	H	(wt%)		0.016	0.160
引張り強さ	MPa		69.9	56.5	60.4
標準偏差	MPa		7.2	14.7	6.9
有機溶剤の比率			1.000	1.000	1.000
E/F			1.000	1.000	1.000

【0064】



【表 16】

			実施例14	実施例15	実施例16	実施例17
有機溶剤	A	(wt%)	69.000	65.000	40.000	69.000
	B	(wt%)	1.000	5.000	40.000	1.000
有機溶剤総和		(wt%)	70.000	70.000	80.000	70.000
化合物(1)	E	(wt%)	30.000	30.000		0.300
	F	(wt%)			20.000	
ポリアミド樹脂	H	(wt%)				0.300
引張り強さ	MPa		49.3	59.8	61.7	57.6
標準偏差	MPa		12.2	8.2	8.2	3.5
有機溶剤の比率			69.000	13.000	1.000	69.000

【0065】

【表 17】

			実施例18	実施例19	実施例20	実施例21
有機溶剤	A	(wt%)	29.000	70.000	40.000	
	B	(wt%)	29.000	10.000	40.000	40.000
	D	(wt%)				40.000
有機溶剤総和		(wt%)	58.000	80.000	80.000	80.000
化合物(1)	E	(wt%)	41.993			
	F	(wt%)		19.920	19.920	19.980
ポリアミド樹脂	H	(wt%)	0.007	0.080	0.080	0.020
引張り強さ	MPa		60.6	70.9	70.9	69.9
標準偏差	MPa		0.9	0.5	0.4	0.3
有機溶剤の比率			1.000	7.000	1.000	1.000

【0066】

【表18】

			実施例22	実施例23	実施例24	実施例25
有機溶剤	A	(wt%)		40.000	40.000	40.000
	B	(wt%)	40.000	40.000	40.000	40.000
	C	(wt%)	40.000			
有機溶剤総和		(wt%)	80.000	80.000	80.000	80.000
化合物(1)	E	(wt%)		10.000	2.000	1.000
	F	(wt%)	19.980			
化合物(2)	F	(wt%)		10.000	17.980	18.980
化合物総和		(wt%)	19.980	20.000	19.980	19.980
ポリアミド樹脂	H	(wt%)	0.020		0.020	0.020
引張り強さ	MPa		65.6	62.1	63.0	64.8
標準偏差	MPa		3.6	6.9	4.5	3.0
有機溶剤の比率			1.000	1.000	1.000	1.000
E/F				1.000	0.111	0.053

【0067】

【表19】

			実施例26	実施例27	実施例28
有機溶剤	A	(wt%)	40.000		
	B	(wt%)	40.000	40.000	40.000
	C	(wt%)			40.000
	D	(wt%)		40.000	
有機溶剤総和		(wt%)	80.000	80.000	80.000
化合物(1)	E	(wt%)	9.990	9.990	9.990
化合物(2)	F	(wt%)	9.990	9.990	9.990
化合物総和		(wt%)	19.980	19.980	19.980
ポリアミド樹脂	H	(wt%)	0.020	0.020	0.020
引張り強さ	MPa		66.0	67.3	57.5
標準偏差	MPa		1.1	0.9	16.3
有機溶剤の比率			1.000	1.000	1.000
E/F			1.000	1.000	1.000

【0068】

【表 20】

			実施例29	実施例30	実施例31
有機溶剤	A	(wt%)	40.000	40.000	40.000
	B	(wt%)	40.000	40.000	40.000
有機溶剤総和		(wt%)	80.000	80.000	80.000
化合物（1）	E	(wt%)	9.992	9.920	9.992
化合物（2）	F	(wt%)	9.992	9.920	9.992
化合物総和		(wt%)	19.984	19.984	19.984
ポリアミド樹脂	H	(wt%)	0.016	0.160	0.016
引張り強さ	MPa		54.5	62.4	25.0
標準偏差	MPa		9.8	9.1	0.8
有機溶剤の比率			1.000	1.000	1.000
E／F			1.000	1.000	1.000

【0069】

【表 21】

			実施例32	実施例33	実施例34
有機溶剤	A	(wt%)	40.000	40.000	40.000
	B	(wt%)	40.000	39.984	39.840
有機溶剤総和		(wt%)	80.000	79.984	79.840
化合物（１）	E	(wt%)	10.000	10.000	10.000
化合物（２）	F	(wt%)	10.000	10.000	10.000
化合物総和		(wt%)	20.000	20.000	20.000
ポリアミド樹脂	H	(wt%)		0.016	0.160
引張り強さ	MPa		69.9	56.5	60.4
標準偏差	MPa		7.2	14.7	6.9
有機溶剤の比率			1.000	1.000	1.000
E／F			1.000	1.000	1.000

【0070】

【表1】～【表21】を含むその他の表の項目としては、有機溶剤Aとしてメタノール（分子量32.04）、Bとしてイソプロピルアルコール（分子量60.10）、Cとしてアセトニトリル（分子量41.05）、Dとしてアセトン（分子量58.08）を表記する。化合物（1）としては、Eとして1,3ジヒドロキシベンゼン、Fとして3,5ジヒドロキシベンゼンカルボン酸、Gとしてサリチル酸を表記する。

ポリアミド樹脂としてはナイロン6樹脂を表記する。

#### 【0071】

また該試験片  $T_1$  と同形状の（比較例1）、（比較例2）、（比較例3）、（比較例4）及び（比較例5）の試験結果は以下に示すとおりである。

（比較例1）接合助剤を使用した試験片と同じ成形条件で、ナイロン6樹脂を1度の射出成形にて、全体を試験片  $T_1$  と同一形状に成形した試験片を使用した。試験結果として、引張り強さは75.1MPa、標準偏差0.3MPaであった。

（比較例2）既成形品部  $T_{11}$  の接合予定面3に接合助剤を塗布せずに、接合助剤を使用した試験片と同じ成形条件で、ナイロン6樹脂を付加成形部  $T_{12}$  を射出付加成形しながら接合した試験片を使用した。試験結果として、引張り強さは17.3MPa、標準偏差9.8MPaであった。

（比較例3）比較例2に対して温度環境を100度とし、それ以外は同じ成形条件で、ナイロン6樹脂を付加成形部  $T_{12}$  を射出付加成形しながら接合した試験片を使用した。試験結果として、引張り強さは27.8MPa、標準偏差0.2MPaであった。

（比較例4）接合助剤を使用した試験片と同じ成形条件で、ナイロン66樹脂を1度の射出成形にて、全体を試験片  $T_1$  と同一形状に成形した試験片を使用した。試験結果として、引張り強さは78.7MPa、標準偏差1.6MPaであった。

（比較例5）既成形品部  $T_{11}$  の接合予定面3に接合助剤を塗布せずに、接合助剤を使用した試験片と同じ成形条件で、ナイロン66樹脂を付加成形部  $T_{12}$  を射出付加成形しながら接合した試験片を使用した。試験結果として、引張り強さは6.86MPa、標準偏差1.6MPaであった。

#### 【0072】

【表1】、【表2】に示される接合助剤は、ポリアミド樹脂を溶解可能な有機溶剤に、その溶解を助けながらポリアミド樹脂成形品の水素結合を切断する化合物（1）よりなる。成形するポリアミド樹脂はナイロン6樹脂である。試験結果として、ポリアミド樹脂一体物（比較例1）の材料強度と遜色ない接合強度で接合し、（比較例2）に対して圧倒的優位性を持った接合強度で接合している。

#### 【0073】

次に【表3】～【表10】に示される接合助剤は、ポリアミド樹脂を溶解可能な有機溶剤、その溶解を助けながらポリアミド樹脂成形品の水素結合を切断する化合物(1)に加えて、ポリアミド樹脂を含んでなる。成形するポリアミド樹脂はナイロン6樹脂である。試験結果として、実施例31をのぞき、ポリアミド樹脂一体物(比較例1)の材料強度と遜色ない接合強度で接合し、(比較例2)に対して圧倒的優位性を持った接合強度で接合している。また実施例31も、(比較例3)に対して圧倒的優位性を持った接合強度で接合している。また【表1】、【表2】に示される接合助剤に対し、接合強度の信頼性を高めることができています。

#### 【0074】

次に【表11】～【表15】に示される接合助剤は、ポリアミド樹脂を溶解可能な有機溶剤、その溶解を助けながらポリアミド樹脂成形品の水素結合を切断する化合物(1)、ポリアミド樹脂に加えて、前記ポリアミド樹脂成形品の水素結合を切断する化合物(1)の水素結合を切断する作用を維持する化合物(2)を含んでなる。成形するポリアミド樹脂はナイロン6樹脂である。試験結果として、実施例31をのぞき、ポリアミド樹脂一体物(比較例1)の材料強度と遜色ない接合強度で接合し、(比較例2)に対して圧倒的優位性を持った接合強度で接合している。また実施例31も、(比較例3)に対して圧倒的優位性を持った接合強度で接合している。また【表1】、【表2】に示される接合助剤に対し、接合強度の信頼性を高めることができています。また図4は、接合助剤を塗布し、ある時間経過ごとに成形を行い、試験を行った結果である。破線は化合物(2)を有さない実施例1の推移で、時間経過と共に接合強度が低下していくのに対し、実線は化合物(2)を有する実施例26の推移で、時間経過を伴ってもその接合強度が低下することなく維持されている。

#### 【0075】

次に【表16】～【表21】に示される接合助剤は、ポリアミド樹脂を溶解可能な複数の有機溶剤、その溶解を助けながらポリアミド樹脂成形品の水素結合を切断する化合物(1)、ポリアミド樹脂に加えて、前記ポリアミド樹脂成形品の水素結合を切断する化合物(1)の水素結合を切断する作用を維持する化合物(2)

）を含んでなる。【表16】～【表20】の成形するポリアミド樹脂はナイロン6樹脂である。【表21】の成形するポリアミド樹脂はナイロン66樹脂である。試験結果として、実施例31、32、33、34をのぞき、ポリアミド樹脂一体物（比較例1）の材料強度と遜色ない接合強度で接合し、（比較例2）に対して圧倒的優位性を持った接合強度で接合している。また実施例31も、（比較例3）に対して圧倒的優位性を持った接合強度で接合している。また【表1】、【表2】に示される接合助剤に対し、接合強度の信頼性を高めることができています。実施例32、33、34も、ポリアミド樹脂一体物（比較例4）の材料強度と遜色ない接合強度で接合し、（比較例5）に対して圧倒的優位性を持った接合強度で接合している。また【表1】、【表2】に示される接合助剤に対し、接合強度の信頼性を高めることができています。

#### 【0076】

次に図面を使って、本発明における現象を追って説明していく。図1に示されるとおり、予め射出成形されている既成形品部T<sub>11</sub>は、そのくびれ部分であって、幅W及び厚さKを有する端面に相当する接合予定面3に、ここでは実施例23の接合助剤を塗布する。塗布直後には、接合助剤が接合予定面3を極僅かに溶解し、そのナイロン6の結晶を解きほぐす。次に添加された1, 3ジヒドロキシベンゼンの水酸基、及び3, 5ジヒドロキシベンゼンカルボン酸の水酸基及びカルボキシル基が、解きほぐされたナイロン6樹脂の水素結合の手を捕まえる。この時、1, 3ジヒドロキシベンゼン及び3, 5ジヒドロキシベンゼンカルボン酸のベンゼン環は、ナイロン6のメチレン鎖となじみ易い疎水性の無極性基なので相互に自着し、水酸基の部分が、接合予定面3の表面に都合よく並ぶことができる。

#### 【0077】

上述したように接合予定面3が僅かに溶解する様子は、5  $\mu$ mスケールのAFMで測定して確認できる。ここで、図5は、（接合助剤を塗布する前の）接合予定面3の表面のAFM測定結果であって、図6は、メタノールのみを接合予定面3に塗布した後のものである。図示されるとおり、図5の上左端部の二つの三角形部分等の先鋭状となって示されるノイズ（5  $\mu$ mスケールでは、大きすぎて

測定不可能な凸) 部分は、図 6 においてなくなっており、メタノールによって接合予定面 3 のナイロン 6 が溶解したことが解かっている。また、接合助剤には、メタノールとイソプロピルアルコールの有機溶剤の他に、1, 3 ジヒドロキシベンゼン及び 3, 5 ジヒドロキシベンゼンカルボン酸が溶解しており、これらの化合物が、接合予定面 3 の溶解を促進する。接合助剤中のメタノール及びイソプロピルアルコールは、塗布後間もなく蒸発するが、1, 3 ジヒドロキシベンゼンがしばらく蒸発せず残存し、さらに 3, 5 ジヒドロキシベンゼンカルボン酸 (CAS 番号; RN [99-10-5]) が蒸発しないため、接合予定面のポリアミド樹脂表面の非晶状態を長時間維持できる。よって、接合する別のポリアミド樹脂と、接合される元の成形品のポリアミド樹脂とを、接合助剤の塗布直後に必ずしも接合処理しなくても、両者の接合強度が損なわれないので、多様な接合作業工程に対応できる。

#### 【0078】

上記したように接合予定面 3 が変形する様子も、前記 AFM で測定して確認されている。図 7 ないし図 9 は、接合助剤を塗布後の接合予定面 3 の AFM 測定結果であって、それぞれ 5 分後、24 時間後、96 時間後のものである。図示されるとおり、塗布 5 分後の接合予定面 3 の表面は、図 5 で示される上記ノイズがなくなり、なだらかな凹凸面に変形しており、24 時間、96 時間と時間が経過すると共に溶解が進行して、前記凹凸が更に平坦になっている。このように、乾燥した状態の接合予定面 3 に作用し続け、水素結合の相手の樹脂を変えながら、接合予定面 3 を溶解すると共に変形することは、ある程度長時間持続することが確認できた。

#### 【0079】

また、接合予定面 3 のポリアミド樹脂の結晶性やアミド結合の会合状態は、赤外線吸収スペクトルによって確認できる。一般に、高分子の赤外線吸収スペクトルにおいては、結晶領域に特有の吸収位置と非晶領域に特有の吸収位置を見出すことによって、その結晶化度を推定することができ、ナイロン 6 の結晶性の吸収は、1030、936  $\text{cm}^{-1}$  の各位置であり、これに対応する無定形の各吸収は、順に、990、1139  $\text{cm}^{-1}$  である。(実施例 23) の接合助剤を塗布した

既成形品部 T<sub>11</sub>の接合予定面3において、約3日間に亘ってその塗布前後におけるスペクトルの増減のみをプロットアウトしながら分析した結果、1000 cm<sup>-1</sup>付近において、結晶性を示す吸収線が減少しながら、これと対になって代わりに無定形化したことを示す吸収線が増加し、936 cm<sup>-1</sup>付近において、結晶性を示す吸収線が減少しながら、無定形化することによってこれと対になって代わりに増加する1139 cm<sup>-1</sup>の吸収線が確認できている。

#### 【0080】

また、アミド結合による特徴的な吸収は、そのカルボニル基によるアミド I の吸収と、N-Hによる吸収とであって、それぞれの会合状態を示す吸収は、1650 cm<sup>-1</sup>、3360 cm<sup>-1</sup>で、それらに対応して非会合状態を示す吸収は、1690 cm<sup>-1</sup>、3420 cm<sup>-1</sup>である。上記したのと同様に赤外線吸収スペクトルで分析した結果、減少する1650 cm<sup>-1</sup>の吸収と、代わりに増加する非会合の1690 cm<sup>-1</sup>の一对の吸収が確認され、N-Hの場合にも同様の一对の吸収が確認されている。

#### 【0081】

次に、ポリアミド樹脂成形品同士を超音波溶着により接合する際に、本発明に係る接合助剤を接合面に塗布した場合と、これを塗布しない場合における接合強度を比較して、本発明に係る接合助剤の超音波溶着における接合効果の確認試験を以下のようにして行ったので、これについて説明する。試験片 T<sub>2</sub>は、第1及び第2の一組の試験片 T<sub>21</sub>, T<sub>22</sub>で構成され、図11及び図12に示される形状のものを使用した。第1試験片 T<sub>21</sub>は、方形状の基板部 21 に方形棒状の突出部 22 が一体に形成されて、突出部 22 の表面が接合面 23 となった板状のものであり、第2試験片 T<sub>22</sub>は、第1試験片 T<sub>21</sub>の方形状の基板部 21 と同一形状であって、その表面が接合面 24 となった板状のものである。第1試験片 T<sub>21</sub>の基板部 21 及び第2試験片 T<sub>22</sub>は、いずれも（長さ L<sub>2</sub>×幅 W<sub>2</sub>×厚さ K<sub>2</sub>=25×17×3 mm）である。第1試験片 T<sub>21</sub>の突出部 22 の外形寸法（L<sub>2</sub>×W<sub>3</sub>）及び#内形寸法（L<sub>3</sub>×W<sub>4</sub>）は、それぞれ（25×12.6 mm），（20.4×8 mm）であると共に、前記突出部 22 の厚さ（K<sub>3</sub>）は（1 mm）である。なお、第1及び第2の各試験片 T<sub>21</sub>, T<sub>22</sub>の各接合面 23, 24 は、成形されたままの状態であ



って、粗面加工（接合面に凹凸を生じさせる加工）は、施さなかった。

#### 【0082】

そして、第1試験片T<sub>21</sub>の接合面23の全面に、本発明の前記第1実施例の接合助剤を塗布した後に、第1試験片T<sub>21</sub>の接合面23と第2試験片T<sub>22</sub>の接合面24とを密着させて、上側の第2試験片T<sub>22</sub>に超音波振動機の振動子25を当てて振動を加えることにより、超音波溶着を行った。ここで、使用した超音波振動機は、「BRANSON社製 8300」であり、溶着時間及び溶着力は、それぞれ(0.4秒), (392 N)であった。

#### 【0083】

また、図12及び図13に示されるように、上記のようにして接合した第1及び第2の各試験片T<sub>21</sub>, T<sub>22</sub>の外側に、それぞれ別体の引張り具26, 27で覆い被せてその凹部26a, 27aに、接合された各試験片T<sub>21</sub>, T<sub>22</sub>をそれぞれ収容して、各引張り具26, 27を締結具（図示せず）によって、各引張り具26, 27を、その引張方向のスライドのみを許容した状態で分離しないように締結する。各引張り具26, 27の対向する面には、それぞれ引張試験機の把持部によって把持される把持片26b, 27bがそれぞれ突出して一体に設けられている。このように、各引張り具26, 27の各把持片26b, 27bを引張試験機の把持部によって把持して、その一方を固定して他方に引張力を加えると、第1及び第2の各試験片T<sub>21</sub>, T<sub>22</sub>の接合部Sには「せん断力」が作用し、この「せん断力」を測定することにより、接合強度を測定した。この「せん断力」は、図13において、紙面に対して垂直な方向に作用する。

#### 【0084】

また、引張試験機は、上記した「インストロン型万能試験機」を使用し、上記試験片T<sub>1</sub>と同一条件の下で、ナイロン6樹脂とナイロン66樹脂に関して、本発明の第1実施例の接合助剤を使用したものと、使用しないものについて、それぞれ5回ずつ試験を行って、接合された第1及び第2の各試験片T<sub>21</sub>, T<sub>22</sub>の「せん断力」を測定し、その測定試験結果が【表22】に示されている。そして、いずれの試験においても、接合された各試験片T<sub>21</sub>, T<sub>22</sub>の「せん断（破断）部位」は、その接合部Sではなくて、各試験片T<sub>21</sub>, T<sub>22</sub>のいずれか一方であっ

た。ここで、ナイロン6樹脂は、ノバミッド101, 3CH5（三菱エンジニアリングプラスチック社製）を使用し、ナイロン66樹脂は、ノバミッド3010SR（三菱エンジニアリングプラスチック社製）を使用した。なお、本発明の接合助剤を使用しない場合における溶着時間は、(0.4秒)では接合が不十分であったため、(0.8秒)とした。

【0085】

【表22】

試験No.	接合助剤有		接合助剤なし(比較例)	
	ナイロン6	ナイロン66	ナイロン6	ナイロン66
No. 1	21.6	18.2	2.9	1.7
No. 2	12.7	20.0	2.8	1.7
No. 3	20.1	18.0	4.1	1.1
No. 4	15.6	18.4	3.2	1.7
No. 5	19.1	15.9	3.9	1.4
平均	17.8	18.1	3.4	1.5
偏差	3.6	1.4	0.6	0.3

単位:MPa

【0086】

ナイロン6樹脂の場合には、たとえば実施例23の接合助剤を使用した場合の「平均せん断力」は(17.8 MPa)であるのに対して、これを使用しない場合の「平均せん断力」は(3.4 MPa)であり、5倍を超える「せん断力」の増加が確認できた。同様に、ナイロン66樹脂の場合には、本発明の第1実施例の接合助剤の使用により12倍を超える「せん断力」の増加が確認できた。この「せん断力(接合強度)」の増加の理論は、上述した射出成形により付加成形した試験片T<sub>1</sub>の場合とほぼ同様と解される。また、本発明の他の実施例の接合助剤を用いても、接合強度の増加割合の差はあるものの、実施例23と同様に大幅な接合強度の増加があるものと推定される。

【図面の簡単な説明】

【図1】

(イ), (ロ)は、それぞれ試験片T<sub>1</sub>の既成形品部T<sub>11</sub>及び射出成形により接合された試験片T<sub>1</sub>の斜視図である。

## 【図 2】

試験片  $T_1$  を成形するための金型  $M$  の分離状態の斜視図である。

## 【図 3】

金型  $M$  に既成形品部  $T_{11}$  をセットした状態の断面図である。

## 【図 4】

実施例 39 と比較例 9 の接合助剤を使用して試験片  $T_1$  を射出成形する場合における接合助剤塗布後から成形するまでの時間に対する接合強度（引張り強さ）の関係を示すグラフである。

## 【図 5】

接合助剤を塗布する前の接合予定面 3 の表面の AFM 測定結果である。

## 【図 6】

同じく、メタノールのみを塗布した接合予定面 3 の AFM 測定結果である。

## 【図 7】

同じく、接合助剤を塗布 5 分後の接合予定面 3 の AFM 測定結果である。

## 【図 8】

同じく、接合助剤を塗布 24 時間後の接合予定面 3 の AFM 測定結果である。

## 【図 9】

同じく、接合助剤を塗布 96 時間後の接合予定面 3 の AFM 測定結果である。

## 【図 10】

超音波溶着用の第 1 及び第 2 の一組の試験片  $T_{21}$ ,  $T_{22}$  の分離状態の斜視図である。

## 【図 11】

同じく溶着時における断面図である。

## 【図 12】

接合された各試験片  $T_{21}$ ,  $T_{22}$  のせん断試験を行う状態を示す斜視図である。

## 【図 13】

図 12 の X-X 線断面図である。

## 【符号の説明】

$T_1$ ,  $T_2$ : 試験片

T<sub>11</sub>：既成形品部

T<sub>12</sub>：付加成形部

T<sub>21</sub>：第 1 試験片

T<sub>22</sub>：第 2 試験片

3：接合予定面

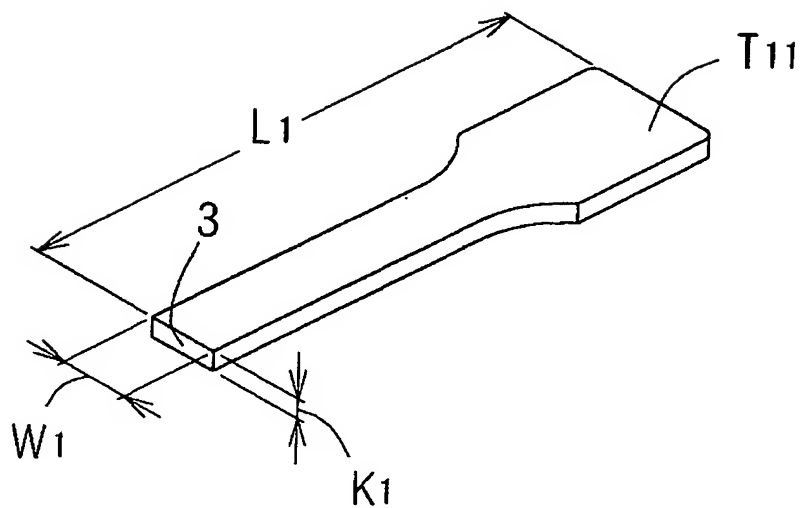
2 3， 2 4：接合面

【書類名】

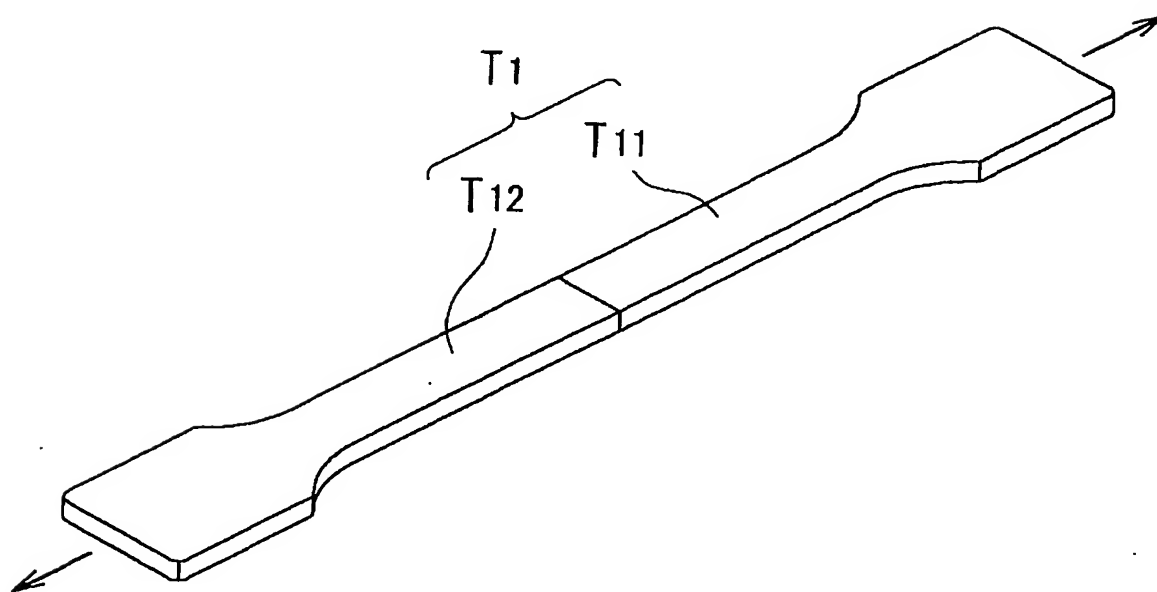
図面

【図 1】

(イ)

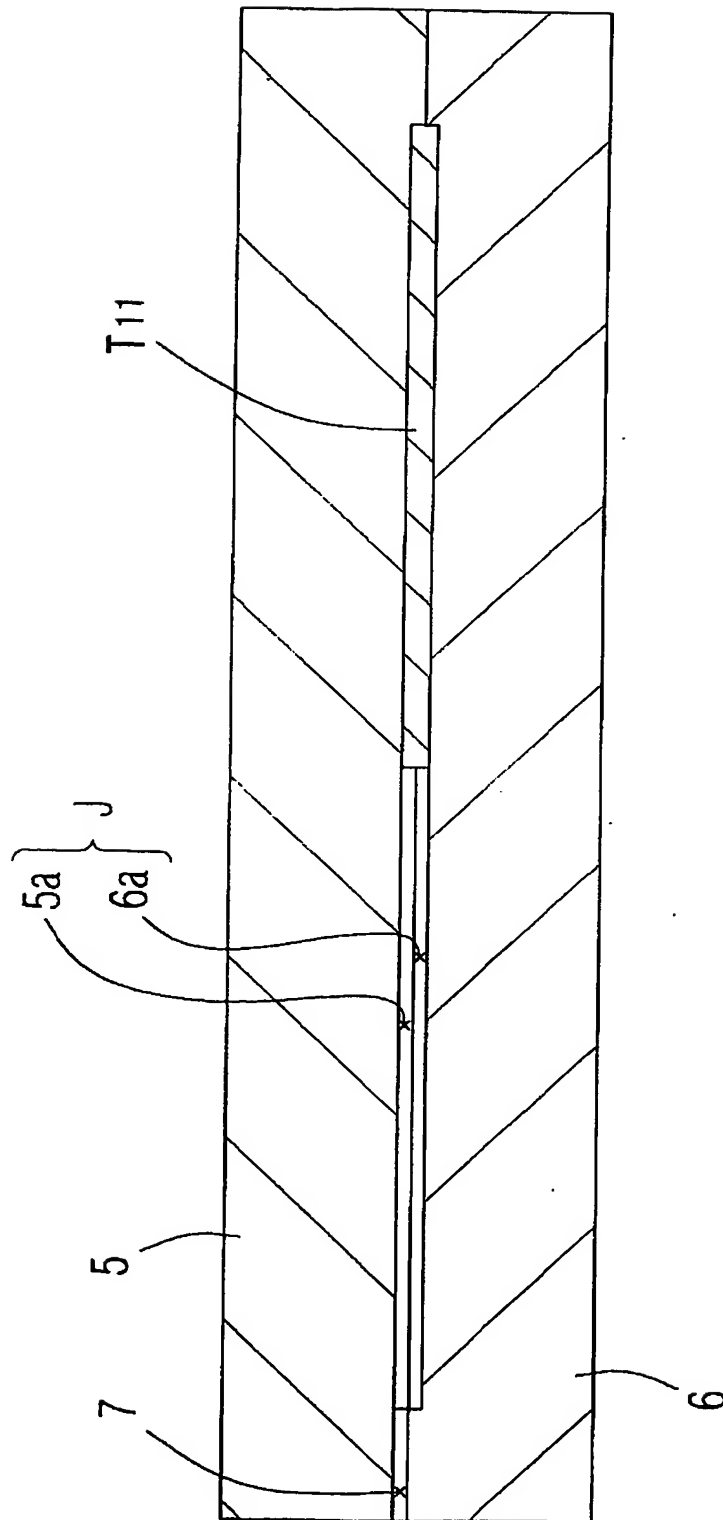


(ロ)

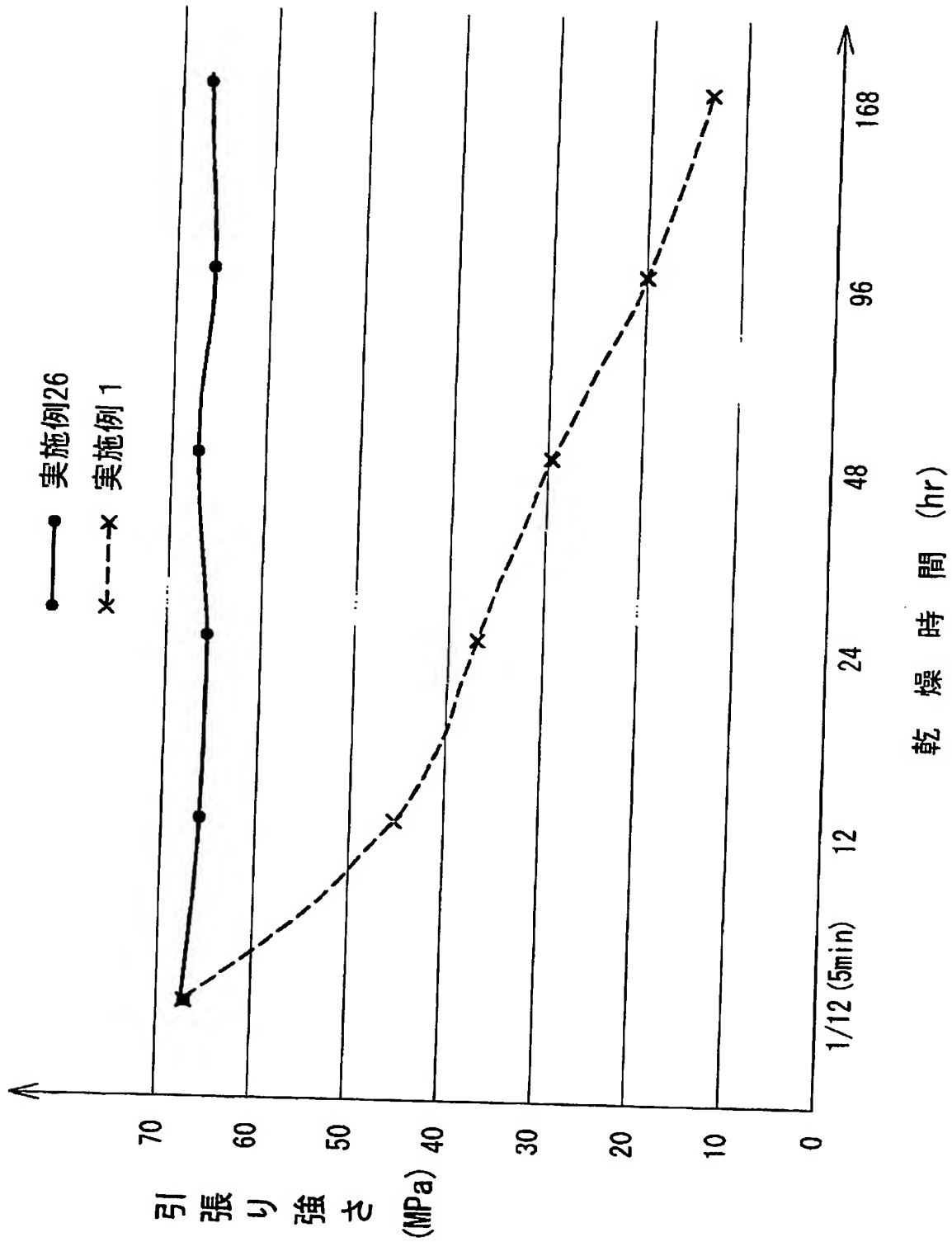




【図 3】

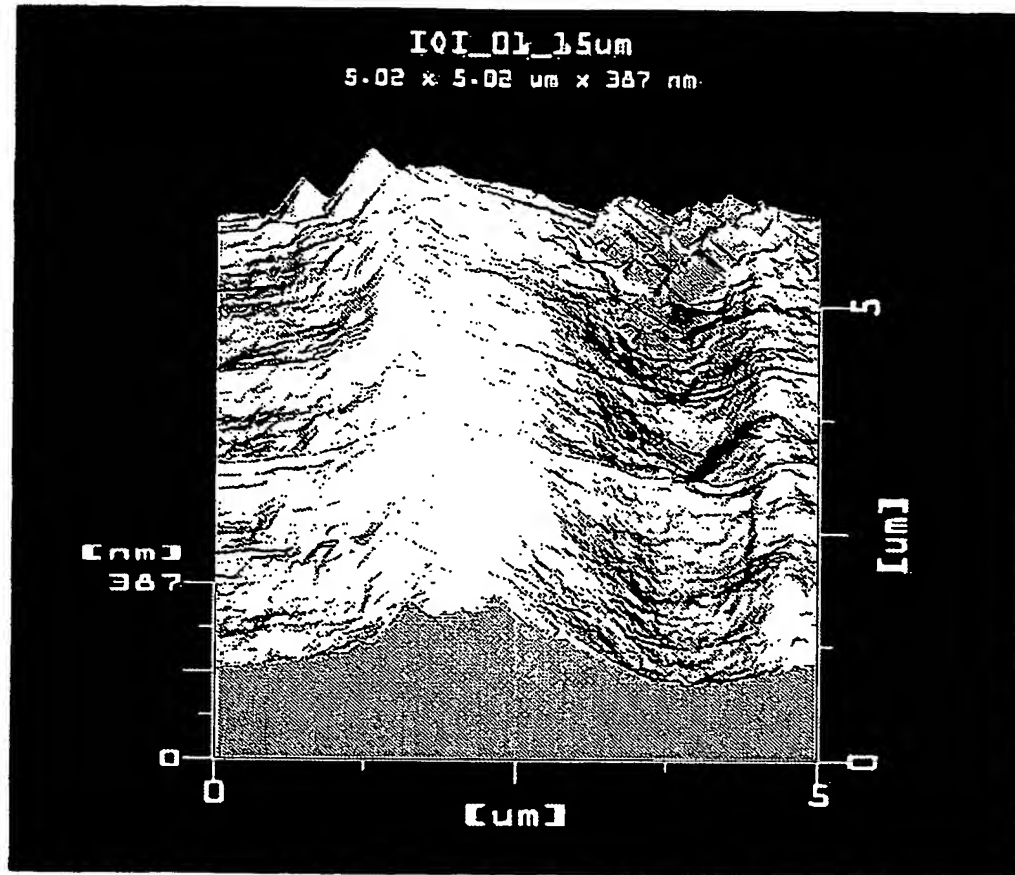


【図 4】



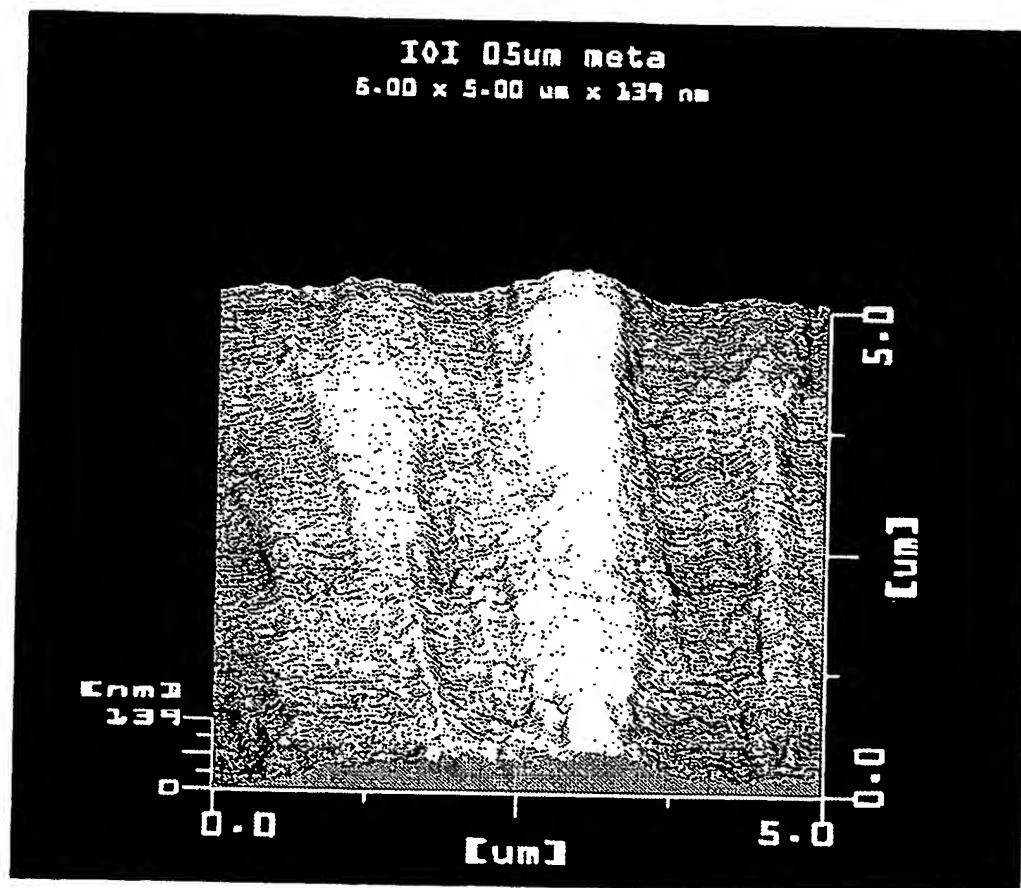


【図5】



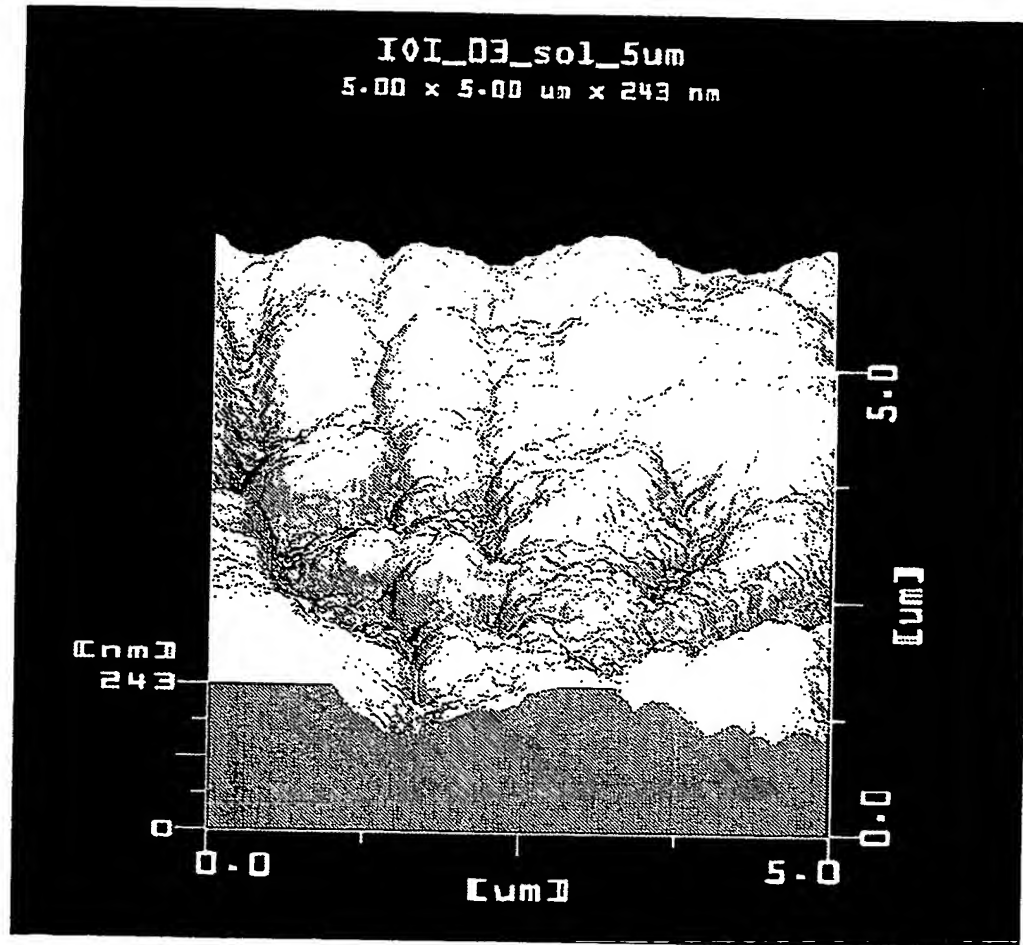
BEST AVAILABLE COPY

【図 6】



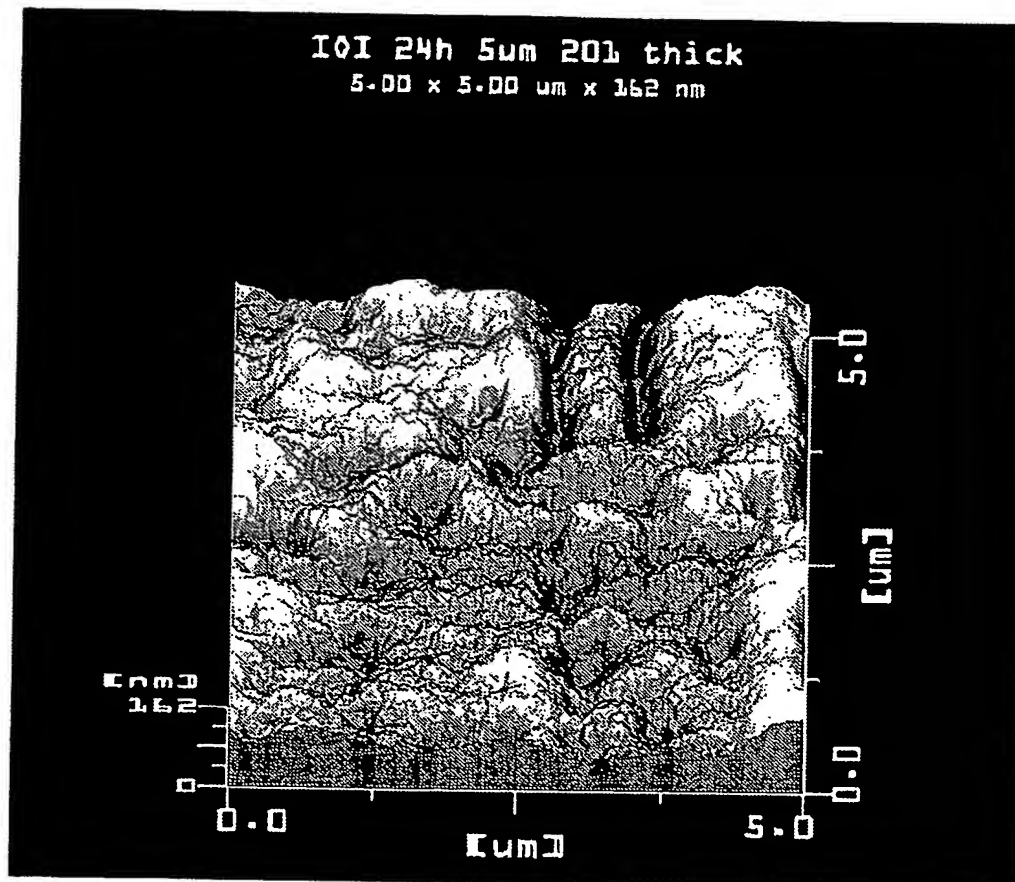
BEST AVAILABLE COPY

【図7】



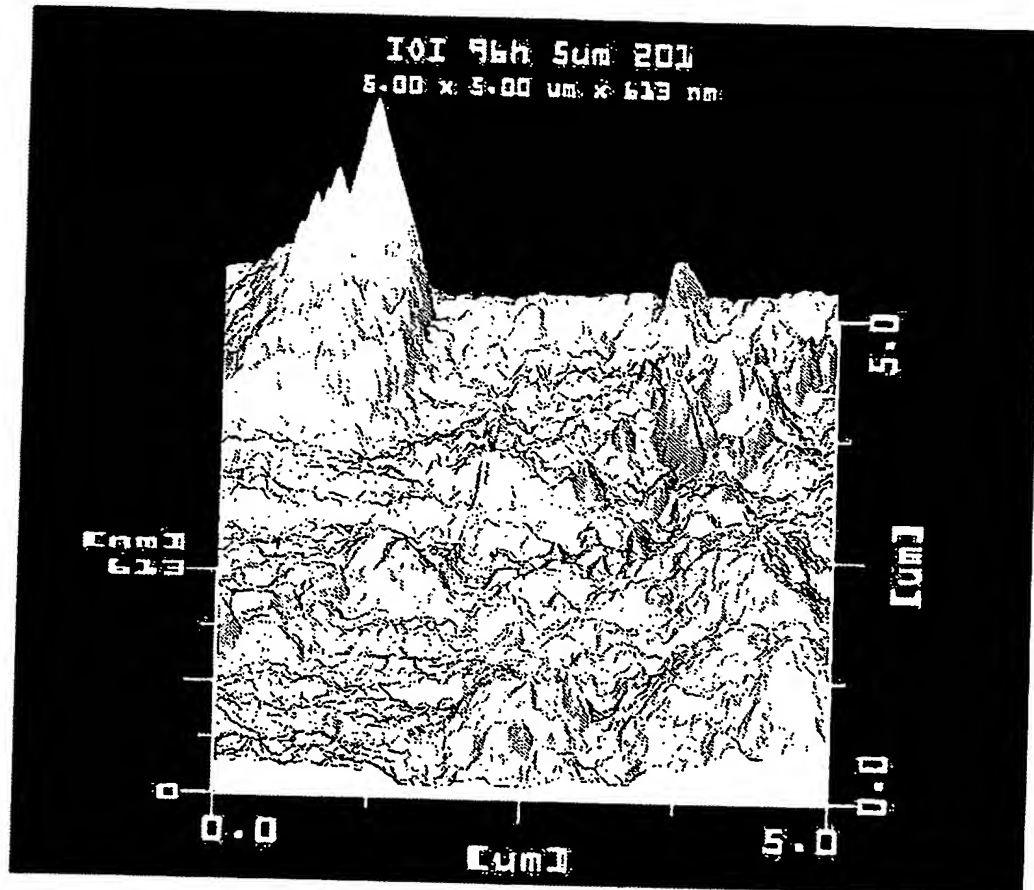
BEST AVAILABLE COPY

【図 8】



BEST AVAILABLE COPY

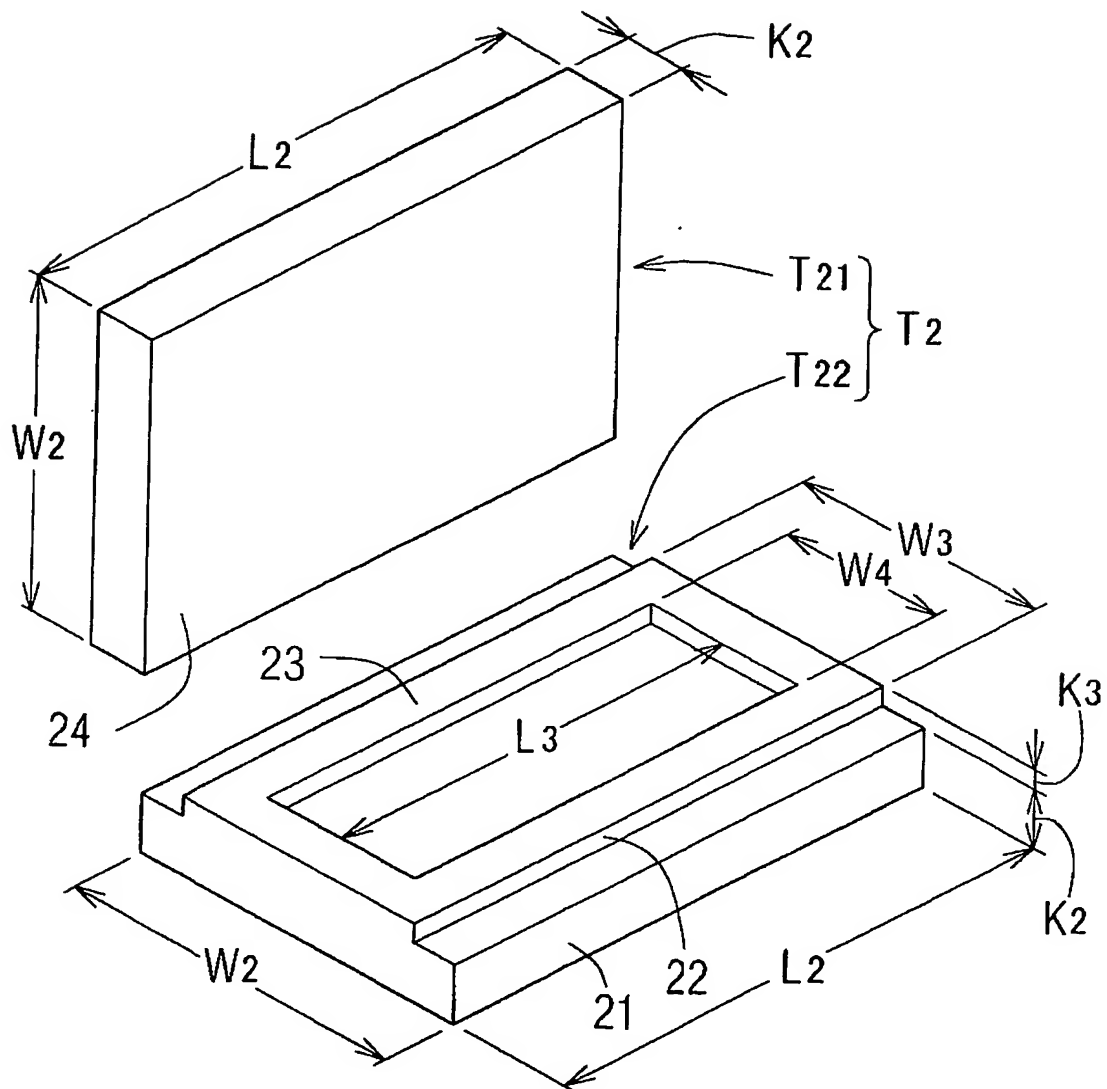
【図 9】



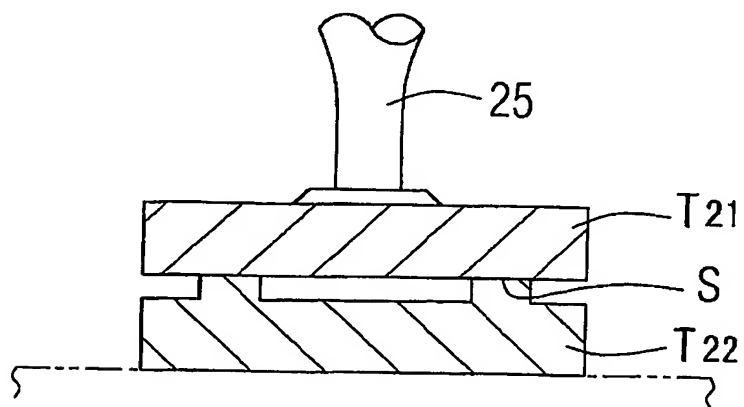
BEST AVAILABLE COPY

出証特 2004-3004413

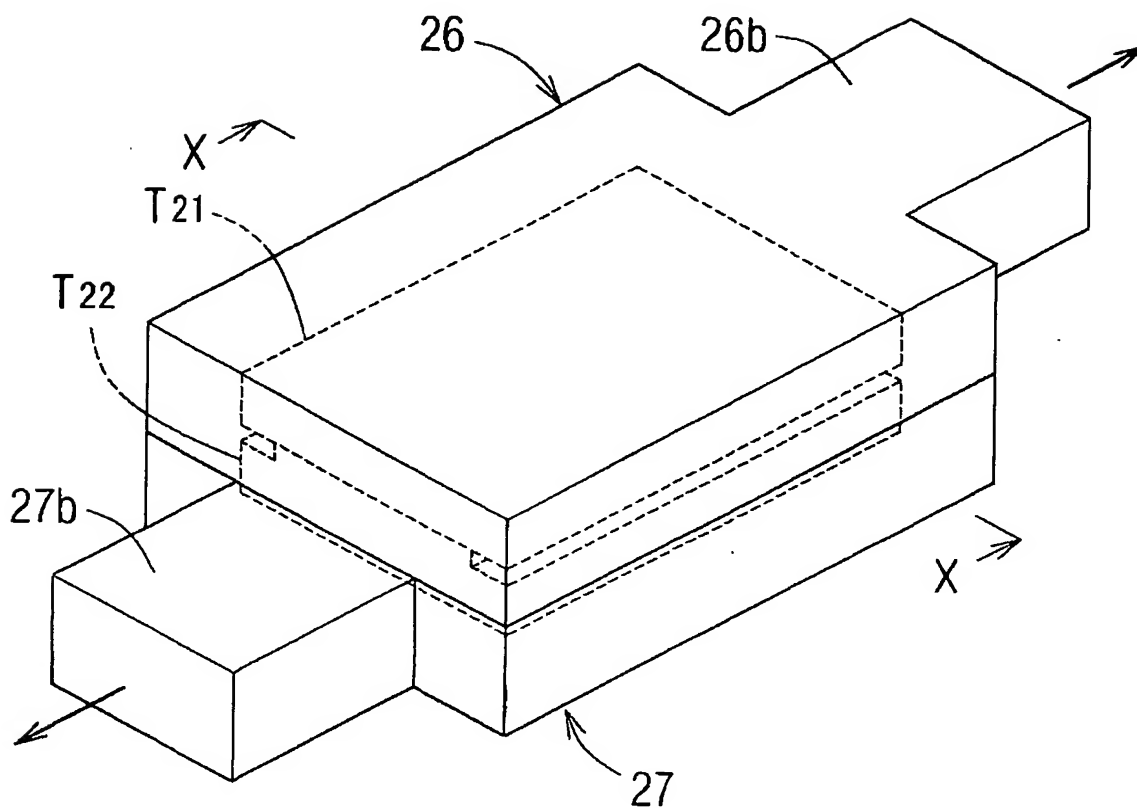
【図 10】



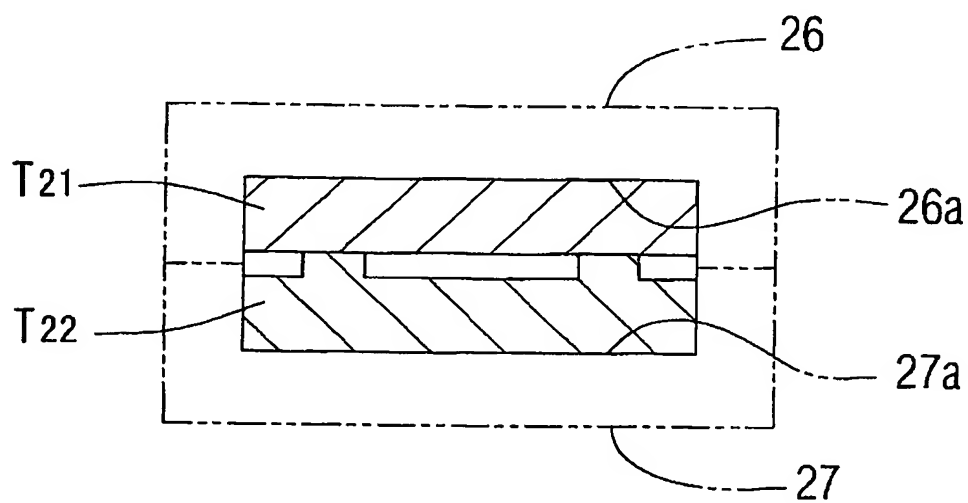
【図 11】



【図 12】



【図 13】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】

ポリアミド樹脂同士を、十分な接合強度を有して接合するポリアミド樹脂の接合助剤、並びにこれを用いた接合工法、及びその加工製品を提供する。

【解決手段】

ポリアミド樹脂成形品の接合予定面に別のポリアミド樹脂を接合する際、両者の接合強度を確保するために、前記接合予定面に塗布するポリアミド樹脂の接合助剤であって、ポリアミド樹脂を溶解可能な有機溶剤に、その溶解を助けながらポリアミド樹脂成形品の水素結合を切断する化合物（１）が含まれる。

【選択図】 図 9



出願人履歴情報

識別番号

[502211065]

1. 変更年月日  
[変更理由]  
住所  
氏名

2002年 6月12日  
新規登録  
愛知県名古屋市中区丸の内1丁目4-29 愛協ビル806  
有限会社 アイ・オーアイ